

## LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

## LE RADIUM

## POLARISATION DE LA LUMIÈRE DIFFUSÉE PAR LES MILIEUX ISOTROPES TROUBLES

Par FRANCIS PERRIN.

**Sommaire.** — Introduction des paramètres nécessaires et suffisants pour la détermination de l'état de polarisation d'un faisceau lumineux diffusé par un milieu isotrope ayant des éléments d'hétérogénéité de dimensions non négligeables par rapport à la longueur d'onde.

R. S. Krishnan appliquant un principe de réciprocité optique pour certains états de polarisation du faisceau incident, a établi l'égalité de 2 des 4 coefficients qui s'introduisent *a priori* dans ce cas.

En utilisant la représentation linéaire de Stokes pour les états de polarisation des faisceaux lumineux monochromatiques, on montre que la diffusion sous un angle donné doit être caractérisée par le tableau des 16 coefficients des formes linéaires qui expriment les 4 paramètres relatifs au faisceau diffusé en fonction des 4 paramètres relatifs au faisceau incident, et que l'application du principe de réciprocité conduit à 6 relations de symétrie ou d'antisymétrie entre ces 16 coefficients. Pour un milieu isotrope asymétrique la diffusion sous un angle donné, et pour une fréquence donnée, est donc caractérisée par 10 coefficients indépendants. Dans le cas d'un milieu symétrique, 4 de ces coefficients sont nécessairement nuls, ce qui réduit à 6 le nombre des coefficients de diffusion.

La comparaison avec la diffusion dipolaire montre que le criterium le plus sûr d'une diffusion multipolaire doit être l'existence d'une certaine ellipticité de la lumière diffusée pour un faisceau incident polarisé linéairement dans une direction oblique par rapport au plan de diffusion.

1. La diffusion de la lumière par un milieu macroscopiquement homogène résulte d'une hétérogénéité microscopique. Si cette hétérogénéité n'existe qu'à une échelle de dimensions très petites par rapport à la longueur d'onde de la lumière utilisée, la diffusion présente les caractères simples bien connus des émissions secondaires dipolaires [1 à 5; 18]. Mais si les éléments d'hétérogénéité ont des dimensions notables par rapport à la longueur d'onde, le phénomène est plus compliqué, et n'a en général été étudié expérimentalement que dans des cas particuliers d'excitation ou d'observation, et du point de vue théorique que pour des particules diffusantes sphériques [6, 7].

Nous nous proposons, en étendant une méthode employée par R. S. Krishnan [8], de mettre en évidence les paramètres indépendants nécessaires pour caractériser de façon générale l'intensité et la polarisation de la lumière diffusée, sous un angle et pour une longueur d'onde donnés, par un milieu isotrope quelconque. Un résumé de ce travail a été présenté à la Société de Chimie-physique en mai 1939 [13].

Nous aurons à distinguer les milieux *symétriques*, pour lesquels le centre de tout volume sphérique

macroscopique est un centre de symétrie, et tout plan passant par ce centre un plan de symétrie, et les milieux *asymétriques*, qui sont en général doués de pouvoir rotatoire. L'isotropie du milieu pourra n'être que macroscopique et résulter d'une distribution isotrope en moyenne d'éléments microscopiques anisotropes.

Nous verrons que les milieux isotropes dont les éléments diffusants ne sont pas très petits par rapport à la longueur d'onde, et qui sont en général plus ou moins *troubles* ou *opalescents*, font intervenir plusieurs paramètres nouveaux dont la mesure pourra contribuer à la détermination de la grandeur, de la forme et des propriétés optiques de ces éléments. Cette méthode d'étude pourra s'appliquer aux fumées, aux brouillards, aux suspensions, aux émulsions, aux solutions colloïdales, aux solutions de substances à grosses molécules. Elle pourra aussi s'appliquer dans le cas de milieux présentant des fluctuations assez étendues, comme les fluides purs ou les mélanges liquides au voisinage d'un état critique, les verres, etc.

Je remercie R. Wurmser, avec lequel j'ai eu, sur ces questions de diffusion, divers échanges d'idées, qui ont été à l'origine de ce travail.



**2. La relation de R. S. Krishnan.** — Dans plusieurs articles publiés en 1938, R. S. Krishnan [8 à 12] a établi théoriquement et donné la vérification expérimentale d'une relation entre les intensités de certaines composantes de la lumière diffusée par un milieu isotrope symétrique, dans quelques conditions de polarisation du faisceau incident.

En un point d'un faisceau lumineux horizontal polarisé linéairement et d'intensité donnée, il considère la diffusion dans une direction horizontale faisant un angle  $\Phi$  avec le faisceau incident, et désigne par  $H_h$  et  $V_h$  les intensités des vibrations horizontale et verticale du faisceau diffusé quand la direction de vibration du faisceau incident est horizontale, et par  $H_v$  et  $V_v$  ces intensités quand cette direction de vibration est verticale. Il définit les facteurs de dépolarisation correspondants du faisceau diffusé par les rapports (en général inférieurs à 1)

$$\rho_h = \frac{V_h}{H_h}, \quad \rho_v = \frac{H_v}{V_v}. \quad (1)$$

La superposition, sans relation de phase, des deux faisceaux incidents de même intensité polarisés à angle droit considérés donne un faisceau incident non polarisé auquel correspond un faisceau diffusé dont les intensités de vibration horizontale et verticale sont  $H_u = H_h + H_v$  et  $V_u = V_h + V_v$ ; le facteur de dépolarisation de ce faisceau diffusé, défini par le rapport

$$\rho_u = \frac{H_u}{V_u},$$

a donc pour valeur

$$\rho_u = \frac{H_h + H_v}{V_h + V_v}. \quad (2)$$

La mesure des trois facteurs de dépolarisation  $\rho_v$ ,  $\rho_u$  et  $\rho_h$  donne donc les rapports des quatre quantités,  $H_h$ ,  $V_h$ ,  $H_v$ ,  $V_v$ .

L'application d'un principe général de réciprocité dû à Lord Rayleigh, a conduit R. S. Krishnan à la relation

$$H_v = V_h, \quad (3)$$

valable pour un milieu symétrique isotrope, ou même seulement de révolution autour de la direction verticale, c'est-à-dire perpendiculaire au plan de diffusion [9].

Cette relation est satisfaite dans deux cas particuliers déjà connus :

1° Pour des particules diffusantes très petites (diffusion dipolaire),  $V_v$ ,  $H_v$ ,  $V_h$  sont indépendants de  $\Phi$  et l'on a (Lord Rayleigh [2])

$$H_v = V_h, \\ H_h = V_v \cos^2 \Phi + H_v \sin^2 \Phi;$$

en particulier pour la diffusion transversale

$$H_v = V_h = H_h, \quad \left( \text{dipôles } \Phi = \frac{\pi}{2} \right). \quad (4)$$

2° Pour des particules diffusantes sphériques de dimension quelconque on a, quel que soit  $\Phi$  (G. Mie [6])

$$H_v = V_h = 0 \quad (\text{sphères}). \quad (5)$$

R. S. Krishnan en a par ailleurs donné la vérification expérimentale pour de grosses particules non sphériques diverses, pour lesquelles les intensités  $H_v$  et  $V_h$  sont bien toujours égales, mais en général différentes de zéro et de l'intensité  $H_h$ .

Des égalités (1), (2) et (3) résulte la relation

$$\rho_u = \frac{1 + \frac{1}{\rho_h}}{1 + \frac{1}{\rho_v}}. \quad (6)$$

Par suite de la réciprocité, il est donc inutile de mesurer le facteur de dépolarisation  $\rho_u$  pour une excitation en lumière naturelle, si l'on a mesuré les facteurs de dépolarisation  $\rho_h$  et  $\rho_v$  relatifs à des excitations polarisées horizontalement et verticalement.

Enfin dans un article de novembre 1939 R. S. Krishnan [14] a considéré le cas où la direction de vibration du faisceau incident polarisé linéairement fait un angle  $\theta$  avec la normale au plan de diffusion. En ne tenant pas compte de la corrélation de phase qui existe alors entre les composantes horizontale et verticale de vibration du faisceau incident, il obtient comme valeur du rapport des intensités des composantes horizontale et verticale de vibration du faisceau diffusé (rapport qu'il nomme encore facteur de dépolarisation)

$$\rho_\theta = \frac{H_\theta}{V_\theta} = \frac{1 + \frac{\tan^2 \theta}{\rho_h}}{\tan^2 \theta + \frac{1}{\rho_v}}. \quad (7)$$

Mais cette formule, bien que conforme aux résultats théoriques particuliers de Lord Rayleigh (petites particules quelconques) et de G. Mie (grosses sphères), ne lui semble pas valable de façon générale à cause de l'arbitraire de l'hypothèse qu'il a faite pour l'obtenir. Il indique d'ailleurs que certaines mesures faites par lui sur de grosses particules non sphériques ne la vérifient pas bien. Nous montrerons pourtant plus loin que cette formule doit être valable pour tout milieu symétrique.

**3. Le principe de réciprocité en optique.** — Dans son livre sur la théorie du Son, Lord Rayleigh a démontré un théorème de réciprocité relatif aux forces et aux déplacements au voisinage d'un état d'équilibre pour un système mécanique obéissant à des équations linéaires [15]. Il a étendu plus tard



à l'optique, sans nouvelle démonstration, cette loi de réciprocité, qui précise dans ce domaine le principe du retour inverse des rayons lumineux, en indiquant en note qu'il faudrait spécifier les états de polarisation [16]. C'est en appliquant ce principe que R. S. Krishnan, en 1938, a établi la relation relative au phénomène de diffusion que nous venons de rappeler; mais les cas considérés par lui sont encore particuliers car ils ne font pas intervenir les corrélations de phase entre les vibrations composantes des faisceaux lumineux. Pour tirer toutes les conséquences possibles, dans l'étude de la diffusion, du principe de réciprocité, il est nécessaire d'en préciser l'énoncé général en optique, ce qui demande quelques précautions.

On sait qu'un faisceau lumineux monochromatique quelconque peut être considéré, d'une infinité de façons, comme la superposition, avec ou sans relation de phase, de deux faisceaux de même direction ayant des états de polarisation pure complémentaires, par exemple polarisations rectilignes perpendiculaires, ou polarisations circulaires inverses. Nous prendrons ici comme états de polarisation simples, pour chaque direction de propagation les états de polarisation rectiligne suivant deux directions rectangulaires fixes.

Étant donné un système pouvant transmettre, disperser ou absorber de diverses façons la lumière qu'il reçoit, considérons, pour un faisceau incident  $\mathcal{F}_1$ , de polarisation simple et d'intensité  $I_1$ , sortant d'un polariseur rectiligne  $N$ , un faisceau émergent particulier  $\mathcal{F}_1$ , dont nous séparerons une composante de polarisation simple et d'intensité  $I'_1$  au moyen d'un polarisateur rectiligne  $N'$ . Associons à ces faisceaux les faisceaux inverses, en considérant un faisceau incident  $\mathcal{F}_2$  sortant du polarisateur  $N'$  avec une intensité égale à l'intensité  $I_1$  et se propageant dans la direction inverse de celle du faisceau émergent  $\mathcal{F}_1$ , et le faisceau émergent correspondant  $\mathcal{F}'_2$  qui sort du polarisateur  $N$  dans la direction opposée à celle du faisceau incident  $\mathcal{F}_1$ . Le principe de réciprocité affirme que l'intensité  $I'_2$  de ce dernier faisceau est égale à  $I'_1$ . *Si deux faisceaux incidents de polarisations simples ont des intensités égales, les faisceaux émergents inverses, de mêmes polarisations simples, qui leur sont associés ont également des intensités égales.*

Pour que ce principe soit vrai il faut que le système traversé soit indifférent au sens de propagation de la lumière, ou si l'on veut au signe du temps, ce qui exige l'absence de mouvements, de courants électriques et de champs magnétiques. On peut l'étendre à des cas plus généraux, à condition d'inverser, en même temps que le sens de la propagation, celui des mouvements, des courants électriques et des champs magnétiques. (Les équations de Maxwell notamment restent satisfaites si l'on inverse simultanément les signes du temps du champ magnétique, et du courant électrique.) On sait par exemple que

le principe du retour inverse de la lumière n'est pas directement applicable à un système où intervient le pouvoir rotatoire magnétique; pour qu'il le devienne il faut inverser le sens du champ magnétique avec celui de la direction de propagation.

Il ne faut aussi considérer que des faisceaux monochromatiques de même fréquence, ou, du moins, que les mécanismes de changements de fréquence puissent être inversés en même temps que le sens de la propagation, comme par exemple un changement de fréquence résultant d'une diffusion sur une surface mobile, dont le mouvement devra être inversé. Mais le principe de réciprocité n'est pas valable pour les phénomènes de fluorescence ou d'effet Raman qui correspondent à des variations irréversibles de fréquence. Dans le domaine de la diffusion il ne s'applique qu'à la diffusion de Rayleigh sans changement de fréquence (ou avec faible changement de fréquence, tant que les mécanismes d'augmentation ou de diminution de fréquence, correspondant aux variations d'énergie de rotation ou de vibration des molécules, jouent symétriquement avec des intensités sensiblement égales).

Enfin la définition des intensités lumineuses devrait être précisée en tenant compte des angles solides d'ouverture et des largeurs des faisceaux, ce qui peut soulever quelques difficultés, sans doute non essentielles, à cause des phénomènes de diffraction.

On peut aussi énoncer le principe de réciprocité du point de vue corpusculaire. Si un photon associé au faisceau incident  $\mathcal{F}_1$  a une probabilité  $p$  de ressortir du système associé au faisceau  $\mathcal{F}'_1$ , réciproquement un photon associé au faisceau  $\mathcal{F}_2$  inverse de  $\mathcal{F}'_1$  a la même probabilité  $p$  de ressortir associé au faisceau  $\mathcal{F}'_2$  inverse du faisceau  $\mathcal{F}_1$ .

On voit que ce principe se rattache au principe général de mécanique quantique sur l'égale probabilité de deux transitions inverses entre des états de même énergie.

#### 4. La représentation linéaire de l'état de polarisation d'un faisceau lumineux de Stokes.

— Considérons d'abord un faisceau parallèle homogène monochromatique complètement polarisé, dont nous représenterons la vibration électrique par ses composantes suivant deux axes rectangulaires  $Oxy$ .

$$\begin{cases} \varepsilon_x = p_1 \cos(\omega t + \varphi_1), \\ \varepsilon_y = p_2 \cos(\omega t + \varphi_2), \end{cases} \quad (8)$$

en précisant que les amplitudes  $p_1$  et  $p_2$  et la pulsation  $\omega$  sont positives. Nous désignerons par  $\delta$  la différence de phase de ces composantes

$$\delta = \varphi_1 - \varphi_2, \quad (9)$$

et par  $I_c$  l'intensité totale de vibration

$$I_c = p_1^2 + p_2^2. \quad (10)$$



L'extrémité du vecteur oscillant  $\vec{\varepsilon}$  ainsi défini décrit, dans le sens direct ou inverse suivant que  $\sin \delta$  est positif ou négatif, une ellipse de demi-axes  $a$  et  $b \leq a$ , dont le grand axe fait un angle  $\alpha$  avec l'axe  $Ox$  <sup>(1)</sup>. Nous poserons

$$\operatorname{tg} \beta = \pm \frac{b}{a}, \quad -\frac{\pi}{4} \leq \beta \leq +\frac{\pi}{4}, \quad (11)$$

en prenant le signe  $+$  ou le signe  $-$  suivant que l'ellipse est parcourue dans le sens direct ou inverse, c'est-à-dire suivant que  $\sin \delta$  est positif ou négatif. On sait que l'on a alors

$$\left. \begin{aligned} p_1^2 - p_2^2 &= I_e \cos 2\beta \cos 2\alpha, \\ 2p_1 p_2 \cos \delta &= I_e \cos 2\beta \sin 2\alpha, \\ 2p_1 p_2 \sin \delta &= I_e \sin 2\beta, \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

et nous désignerons ces trois quantités, qui définissent la vibration elliptique (sauf sa phase), respectivement par  $M_e$ ,  $C_e$ ,  $S_e$ . Rappelons aussi que la représentation de Poincaré fait correspondre à la vibration elliptique considérée le vecteur spatial de longueur  $I_e$ , de longitude  $2\alpha$  et de latitude  $2\beta$  et par suite de composantes  $M_e$ ,  $C_e$ ,  $S_e$  suivant les axes de référence.

Aucun faisceau de lumière n'est en fait rigoureusement monochromatique. Les amplitudes et les phases des composantes suivant deux axes de toute vibration lumineuse subissent par suite des variations « séculaires » en général sans corrélation stricte. L'ellipse de vibration, définie à chaque instant, se modifie ainsi rapidement au cours du temps, et seules des mesures moyennes sont possibles, ce qui explique les états de polarisation partielle de la lumière.

L'étude de la polarisation d'un faisceau lumineux se fait au moyen d'analyseurs permettant chacun de mesurer l'intensité moyenne d'une vibration  $\varepsilon_a$  résultant d'une combinaison linéaire, avec certains déphasages, des composantes  $\varepsilon_x$  et  $\varepsilon_y$  de la vibration initiale

$$\varepsilon_a = c_1 p_1 \cos(\omega t + \varphi_1 + \eta_1) + c_2 p_2 \cos(\omega t + \varphi_2 + \eta_2).$$

Cette intensité moyenne a pour valeur

$$\begin{aligned} I_a &= c_1^2 \overline{p_1^2} + c_2^2 \overline{p_2^2} \\ &\quad + 2c_1 c_2 \cos(\eta_1 - \eta_2) \overline{p_1 p_2 \cos \delta} \\ &\quad - 2c_1 c_2 \sin(\eta_1 - \eta_2) \overline{p_1 p_2 \sin \delta}, \end{aligned}$$

le trait placé au-dessus d'une expression indiquant qu'on en prend la valeur moyenne dans le temps. L'utilisation de quatre analyseurs distincts permet donc de déterminer les quantités

$$\mu = \overline{p_1^2}, \quad \nu = \overline{p_2^2}, \quad \gamma = \overline{p_1 p_2 \cos \delta}, \quad \sigma = \overline{p_1 p_2 \sin \delta} \quad (13)$$

et réciproquement la connaissance de ces quatre quantités permet de calculer l'intensité mesurée au

moyen d'un analyseur quelconque correspondant à des facteurs  $c_1$  et  $c_2$  et à un déphasage  $(\eta_1 - \eta_2)$  donnés. Au lieu des quatre paramètres  $\mu$ ,  $\nu$ ,  $\gamma$ ,  $\sigma$ , on peut définir l'état de polarisation partielle par les quatre quantités équivalentes

$$\left. \begin{aligned} I &= \mu + \nu = \overline{p_1^2} + \overline{p_2^2} = \overline{I_e}, \\ M &= \mu - \nu = \overline{p_1^2} - \overline{p_2^2} = \overline{M_e} = \overline{I_e \cos 2\beta \cos 2\alpha}, \\ C &= 2\gamma = \overline{2p_1 p_2 \cos \delta} = \overline{C_e} = \overline{I_e \cos 2\beta \sin 2\alpha}, \\ S &= 2\sigma = \overline{2p_1 p_2 \sin \delta} = \overline{S_e} = \overline{I_e \sin 2\beta}, \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

qui sont celles dont Stokes avait montré qu'elles caractérisaient complètement le faisceau [17].

La propriété essentielle des paramètres ainsi introduits est de s'additionner lorsque l'on superpose deux faisceaux indépendants, c'est-à-dire sans aucune corrélation entre les perturbations de leurs phases ou de leurs amplitudes. Cette additivité caractérise l'absence d'interférences.

Les quatre quantités  $I$ ,  $M$ ,  $C$ ,  $S$  relatives à un faisceau quelconque satisfont à l'inégalité

$$I \geq \sqrt{M^2 + C^2 + S^2}, \quad (15)$$

l'égalité n'ayant lieu que pour un faisceau complètement polarisé. Et cette condition est suffisante pour que quatre quantités  $I$ ,  $M$ ,  $C$ ,  $S$  puissent définir un état de polarisation.

Un faisceau ayant une polarisation partielle quelconque, définie par des valeurs  $I$ ,  $M$ ,  $C$ ,  $S$  des paramètres de Stokes, peut être considéré comme la superposition d'un faisceau de lumière naturelle d'intensité

$$I_n = I - \sqrt{M^2 + C^2 + S^2}, \quad (16)$$

et d'un faisceau indépendant complètement polarisé d'intensité

$$I_e = \sqrt{M^2 + C^2 + S^2}, \quad (17)$$

et dont l'ellipse de vibration est définie par les relations

$$\left. \begin{aligned} M_e &= I_e \cos 2\beta \cos 2\alpha = M, \\ C_e &= I_e \cos 2\beta \sin 2\alpha = C, \\ S_e &= I_e \sin 2\beta = S. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

On appelle taux de polarisation le rapport de l'intensité de ce faisceau polarisé elliptiquement à l'intensité totale

$$p = \frac{I_e}{I} = \frac{\sqrt{M^2 + C^2 + S^2}}{I} \quad (0 \leq p \leq 1). \quad (19)$$

Lorsqu'un faisceau de lumière traverse un dispositif optique, ou plus généralement donne naissance à un faisceau secondaire par un mécanisme linéaire quelconque, l'état de polarisation du faisceau émergent est déterminé par celui du faisceau incident. Et si l'on superpose deux faisceaux incidents indépendants, le nouveau faisceau émergent est la superposition sans interférence des deux faisceaux émergents qui

<sup>(1)</sup>  $\alpha$  est défini à un multiple entier de  $\pi$  près.



correspondaient aux deux faisceaux incidents séparés. Il en résulte nécessairement, d'après les propriétés additives des paramètres de Stokes, que les paramètres  $I'$ ,  $M'$ ,  $C'$ ,  $S'$ , qui définissent la polarisation du faisceau émergent, sont des fonctions linéaires et homogènes des paramètres  $I$ ,  $M$ ,  $C$ ,  $S$  qui définissent celle du faisceau incident, les coefficients de ces fonctions linéaires caractérisant le dispositif traversé, ou le mécanisme de l'émission secondaire. Cette remarque fondamentale est due dans toute sa généralité à P. Soleillet [18]; nous l'appliquerons dans le prochain paragraphe au phénomène de la diffusion. Nous donnerons seulement ici les formules de transformation linéaire des paramètres de Stokes dans deux cas simples que nous aurons à considérer au cours des raisonnements suivants :

Lorsque le faisceau lumineux subit une rotation d'un angle  $\psi$  autour de sa direction de propagation, par exemple en traversant une lame douée de pouvoir rotatoire, on a

$$\left. \begin{aligned} I' &= I, \\ M' &= M \cos 2\psi - C \sin 2\psi, \\ C' &= M \sin 2\psi + C \cos 2\psi, \\ S' &= S. \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

Ces formules déterminent également la transformation des paramètres de Stokes quand on fait tourner d'un angle  $-\psi$  les axes de référence auxquels est rapportée la vibration lumineuse.

Lorsqu'un déphasage  $\varphi$  est introduit entre les composantes suivant les axes de la vibration, par exemple par la traversée d'une lame biréfringente ayant ses axes parallèles aux axes de référence (axe rapide suivant  $Ox$  pour  $\varphi > 0$ ), on a

$$\left. \begin{aligned} I' &= I, \\ M' &= M, \\ C' &= C \cos \varphi - S \sin \varphi, \\ S' &= C \sin \varphi + S \cos \varphi. \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

Indiquons enfin brièvement comment on peut généraliser ces considérations et les rattacher à la statistique ondulatoire de J. von Neumann. Soit un système comportant  $n$  oscillations harmoniques de même fréquence soumises à de faibles perturbations aléatoires, que nous pourrions représenter par les expressions complexes

$$\varepsilon_k = P_k e^{i\omega t}, \quad P_k = p_k e^{i\eta_k}, \quad (22)$$

les modules  $p_k$  et les arguments  $\eta_k$  variant au cours du temps, lentement par rapport à la période d'oscillation, mais rapidement par rapport à la durée des mesures. Supposons que nous puissions mesurer l'intensité moyenne d'une oscillation  $\varepsilon$  dépendant linéairement de ces oscillations

$$\varepsilon = \Sigma C_k \varepsilon_k, \quad C_k = c_k e^{i\eta_k}. \quad (23)$$

Cette intensité moyenne a pour valeur (l'astérisque

indiquant le passage à la quantité complexe conjuguée)

$$\overline{\varepsilon \varepsilon^*} = \sum_{k,l} C_k C_l^* \overline{P_k P_l^*}, \quad (24)$$

elle ne dépend des oscillations particulières considérées que par l'intermédiaire de la matrice de J. von Neumann [19]

$$\Gamma_{kl} = \overline{P_k P_l^*} \quad (25)$$

dont la connaissance détermine tout ce que nous pourrions savoir par de telles mesures de ces oscillations. Cette matrice étant hermitique on peut poser

$$\Gamma_{kk} = \mu_k, \quad \Gamma_{kl} = \gamma_{kl} + i\sigma_{kl} \quad (k \neq l), \quad (26)$$

$\mu_k$ ,  $\gamma_{kl} = \gamma_{lk}$ ,  $\sigma_{kl} = -\sigma_{lk}$  étant des quantités réelles. Les éléments diagonaux  $\mu_k$  sont les intensités des diverses oscillations

$$\mu_k = \overline{P_k^2} \quad (27)$$

et les éléments mixtes, à indices différents, définissent les corrélations entre oscillations

$$\gamma_{kl} = \overline{P_k P_l \cos(\varphi_k - \varphi_l)}, \quad \sigma_{kl} = \overline{P_k P_l \sin(\varphi_k - \varphi_l)}. \quad (28)$$

L'état d'excitation de  $n$  oscillateurs est ainsi défini par  $n^2$  quantités réelles. Par exemple une oscillation vectorielle dans l'espace, qui a trois composantes, doit être définie, comme l'a montré P. Soleillet [18], par neuf quantités. De même les possibilités d'interférence entre deux faisceaux lumineux quelconques dépendent de seize paramètres puisqu'il y a quatre vibrations composantes (deux pour chaque faisceau).

Lorsque les oscillations considérées sont les composantes d'un vecteur oscillant  $\vec{P} e^{i\omega t}$  la matrice  $\Gamma_{kl}$  possède, lors des changements d'axes de référence, la variance d'un tenseur du second ordre, puisque ses termes sont les valeurs moyennes des produits des composantes des deux vecteurs  $\vec{P}$  et  $\vec{P}^*$ .

On démontre que le déterminant de la matrice  $\Gamma_{kl}$  est positif ou nul, ainsi que tous ses mineurs diagonaux.

Quand les  $P_k$  sont constants, ou du moins quand leurs rapports le sont, l'état d'oscillation du système est dit *pur* (polarisation complète dans le cas d'un faisceau de lumière) : tous les mineurs diagonaux du déterminant de la matrice  $\Gamma_{kl}$  sont alors nuls, et réciproquement. Lorsqu'il n'en est pas ainsi l'état est dit *mêlé* (polarisation partielle). En général un état d'oscillation mêlé peut être considéré d'une infinité de façons comme la superposition de  $n$  états purs sans corrélation (pour qu'un état soit équivalent à la superposition d'un nombre moindre d'états purs, il faut que le déterminant des  $\Gamma_{kl}$  soit nul).

Plus généralement encore, on peut, d'une façon



analogue, déterminer les éléments qui seront mis en évidence par l'étude linéaire moyenne d'un système non harmonique dont le mouvement est défini par  $n$  fonctions aléatoires du temps  $\varepsilon_k(t)$  quelconques. Ce seront les *fonctions de corrélation* de M. Courtines [20] et J. Bernamont [21]

$$f_{kl}(\tau) = \overline{\varepsilon_k(t) \varepsilon_l(t + \tau)} = f_{lk}(-\tau) \quad (29)$$

ou leurs transformées par l'intégrale de Laplace

$$\Gamma_{kl}(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} f_{kl}(\tau) e^{-2\pi i \nu \tau} d\tau, \quad (30)$$

qui sont les amplitudes de leurs développements en intégrale de Fourier

$$f_{kl}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Gamma_{kl}(\nu) e^{2\pi i \nu \tau} d\nu \quad (31)$$

et satisfont à la condition d'hermiticité

$$\Gamma_{lk}(\nu) = \Gamma_{kl}(\nu)^*. \quad (32)$$

On voit que l'état d'agitation d'un système à  $n$  degrés de liberté est caractérisé, vis-à-vis des méthodes d'analyse linéaire moyenne, par  $n^2$  spectres continus déterminant, pour chaque fréquence,  $n$  densités spectrales d'intensité et  $n(n-1)$  densités spectrales de corrélation.

**5. Les 16 coefficients de diffusion d'un milieu isotrope quelconque.** — Un faisceau de lumière monochromatique parallèle  $\mathcal{F}_1$  se propageant dans

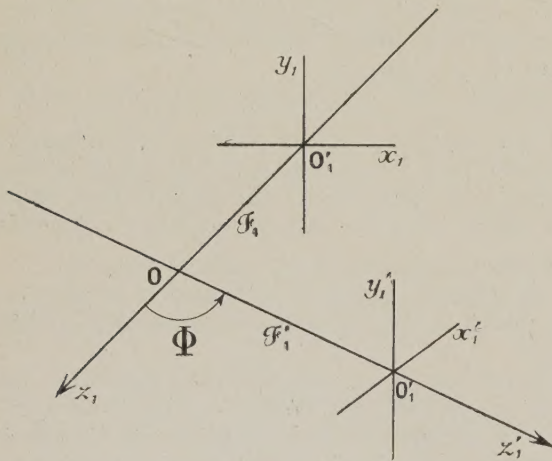


Fig. 1.

un milieu isotrope suivant un axe  $O_1 z_1$ , nous considérons la lumière diffusée en un point  $O$  de cet axe dans une direction  $Oz'$ , faisant avec  $Oz_1$  un angle  $\Phi$  (compris entre 0 et  $\pi$ ). Nous définirons l'état de polarisation du faisceau excitateur  $\mathcal{F}_1$  par les valeurs  $I_1, M_1, C_1, S_1$  de ses paramètres de Stokes relatifs à des axes  $O_1 x_1 y_1$ , et celui du faisceau diffusé  $\mathcal{F}_1$  par les valeurs  $I'_1, M'_1, C'_1, S'_1$  de ses paramètres de

Stokes relatifs à des axes  $O'_1 x'_1 y'_1$ , les trièdres  $O_1 x_1 y_1 z_1$  et  $O'_1 x'_1 y'_1 z'_1$  étant directs, les plans  $O_1 z_1 x_1$  et  $O'_1 z'_1 x'_1$  coïncidant et les axes parallèles  $O_1 y_1$  et  $O'_1 y'_1$  étant orientés de façon que la rotation  $\Phi$  inférieure à  $\pi$  qui amène  $Oz_1$  sur  $Oz'_1$  se fasse dans le sens positif autour de leur direction commune (fig. 1).

Nous admettrons le caractère linéaire du phénomène de diffusion vis-à-vis de la superposition de faisceaux incohérents. Si deux faisceaux excitateurs  $\mathcal{F}$  et  $\mathcal{G}$  pouvant se propager suivant  $O_1 z_1$  donnent séparément dans la direction  $Oz'_1$  des faisceaux diffusés  $\mathcal{F}$  et  $\mathcal{G}$ , le faisceau diffusé lorsqu'on superpose les faisceaux excitateurs  $\mathcal{F}$  et  $\mathcal{G}$  sans relation de phase doit s'obtenir en superposant les faisceaux  $\mathcal{F}'$  et  $\mathcal{G}'$  également sans relation de phase. Les paramètres de Stokes étant additifs quand on superpose deux faisceaux sans relation de phase, ceci exige que les quantités  $I_1, M_1, C_1, S_1$  soient des fonctions linéaires homogènes des quantités  $I_1, M_1, C_1, S_1$ ,

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= a_{11} I_1 + a_{12} M_1 + a_{13} C_1 + a_{14} S_1, \\ M'_1 &= a_{21} I_1 + a_{22} M_1 + a_{23} C_1 + a_{24} S_1, \\ C'_1 &= a_{31} I_1 + a_{32} M_1 + a_{33} C_1 + a_{34} S_1, \\ S'_1 &= a_{41} I_1 + a_{42} M_1 + a_{43} C_1 + a_{44} S_1, \end{aligned} \right\} \quad (33)$$

les 16 coefficients de diffusion  $a_{ik}$  ne dépendant, pour un milieu et une fréquence donnés, que de l'angle de diffusion  $\Phi$ .

Des considérations de symétrie et de réciprocité permettent de montrer que le nombre des coefficients indépendants qui caractérisent la diffusion est en réalité inférieur à 16.

**6. Milieu symétrique.** — En premier lieu, si le milieu est symétrique, et par suite dénué de pouvoir rotatoire, le plan de diffusion  $Oz_1 z'_1$ , formé par les directions d'excitation et d'observation, est un plan de symétrie pour le milieu diffusant. Donc si l'on remplace le faisceau excitateur ( $I_1, M_1, C_1, S_1$ ) par le faisceau symétrique par rapport à ce plan, faisceau qui a pour paramètres ( $I_1, M_1, -C_1, -S_1$ ), le nouveau faisceau diffusé doit être symétrique du faisceau diffusé initial, c'est-à-dire avoir pour paramètres ( $I'_1, M'_1, -C'_1, -S'_1$ ). Autrement dit les relations (33) doivent rester satisfaites si l'on y change les signes des paramètres  $C_1, S_1, C'_1, S'_1$  quelles que soient d'ailleurs les valeurs de  $I_1, M_1, C_1, S_1$ . Ceci exige que, pour un milieu dénué de pouvoir rotatoire, on ait

$$a_{13} = a_{14} = a_{23} = a_{24} = a_{31} = a_{32} = a_{41} = a_{42} = 0,$$

et que par suite les relations (33) se réduisent à

$$\left. \begin{aligned} I'_1 &= a_{11} I_1 + a_{12} M_1, \\ M'_1 &= a_{21} I_1 + a_{22} M_1, \\ C'_1 &= a_{33} C_1 + a_{34} S_1, \\ S'_1 &= a_{43} C_1 + a_{44} S_1. \end{aligned} \right\} \quad (33bis)$$

Pour un milieu symétrique la diffusion dépend donc au plus de 8 paramètres indépendants.



**7. Réciprocité.** — Il nous faut maintenant appliquer le principe de réciprocité, en considérant un faisceau excitateur  $\mathcal{F}_2$  se dirigeant suivant  $Oz_2$  en sens inverse de la direction  $Oz'_1$  du faisceau diffusé

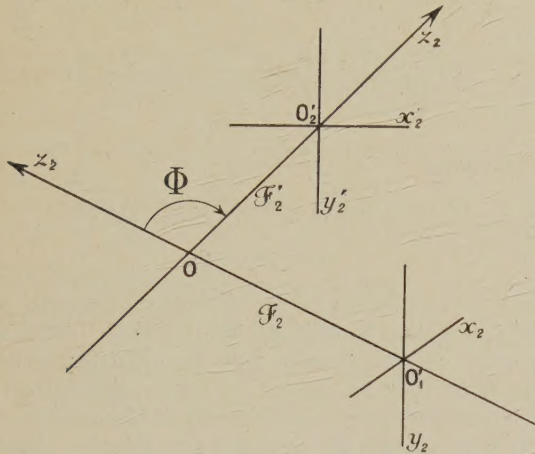


Fig. 2.

d'abord observé, et le faisceau diffusé correspondant  $\mathcal{F}'_2$  dans la direction  $Oz'_2$  opposée à la direction  $Oz_1$  du faisceau initial d'excitation (fig. 2). Nous prendrons pour axes servant à définir les états de polarisation de ces nouveaux faisceaux  $\mathcal{F}_2$  et  $\mathcal{F}'_2$  des axes ayant par rapport à eux la même disposition que les axes définis précédemment par rapport aux faisceaux  $\mathcal{F}_1$  et  $\mathcal{F}'_1$ . Pour le faisceau  $\mathcal{F}_2$  un axe  $O_2x_2$  coïncidant avec  $O'_1x'_1$  et un axe  $O_2y_2$  opposé à  $O_1y_1$ , pour le faisceau  $\mathcal{F}'_2$  un axe  $O'_2x'_2$  coïncidant avec  $O_1x_1$  et un axe  $O'_2y'_2$  opposé à  $O_1y_1$ . Dans ces conditions les paramètres  $I'_2, M'_2, C'_2, S'_2$  relatifs au faisceau diffusé  $\mathcal{F}'_2$  s'exprimeront linéairement en fonction des paramètres  $I_2, M_2, C_2, S_2$  relatifs au faisceau excitateur  $\mathcal{F}_2$  par des relations identiques aux relations (33)

$$\left. \begin{aligned} I'_2 &= a_{11}I_2 + a_{12}M_2 + a_{13}C_2 + a_{14}S_2, \\ M'_2 &= a_{21}I_2 + a_{22}M_2 + a_{23}C_2 + a_{24}S_2, \\ C'_2 &= a_{31}I_2 + a_{32}M_2 + a_{33}C_2 + a_{34}S_2, \\ S'_2 &= a_{41}I_2 + a_{42}M_2 + a_{43}C_2 + a_{44}S_2, \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

les coefficients  $a_{ik}$  ayant les mêmes valeurs, puisque le milieu est supposé isotrope <sup>(2)</sup>, et que l'angle de diffusion a la même valeur  $\Phi$ .

Pour pouvoir exprimer la réciprocité, il faut introduire sur les trajets des faisceaux excitateurs et diffusés des dispositifs optiques permettant d'avoir comme faisceaux initial et final des faisceaux de polarisation simple invariable, et tels qu'ils permettent pourtant la formation d'un faisceau exci-

tateur de polarisation quelconque et l'analyse du faisceau diffusé.

Nous placerons sur le faisceau excitateur  $\mathcal{F}_1$  1° un polariseur rectiligne  $N$  d'orientation fixe telle que la vibration électrique de la lumière qui en sort soit dirigée suivant  $O_1x_1$ , cette lumière ayant par suite pour paramètres  $(1, 1, 0, 0)$ ; 2° une lame  $R_1$  douée de pouvoir rotatoire faisant tourner le plan de vibration de la lumière d'un angle  $\psi_1$ , les paramètres du faisceau prenant ainsi d'après les formules (20) les valeurs  $(1, \cos 2\psi_1, \sin 2\psi_1, 0)$ ; 3° une lame biréfringente  $B_1$ , ayant ses axes parallèles aux axes  $O_1x_1y_1$  et introduisant une différence de phase  $\varphi_1$  entre les vibrations suivant  $O_1x_1$  et  $O_1y_1$ . Les paramètres du faisceau excitateur ainsi formé ont pour valeurs d'après les formules (21)

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= 1, \\ M_1 &= \cos 2\psi_1, \\ C_1 &= \sin 2\psi_1 \cos \varphi_1, \\ S_1 &= \sin 2\psi_1 \sin \varphi_1. \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

Sur le trajet du faisceau diffusé  $\mathcal{F}'_2$ , dont les paramètres  $I'_1, M'_1, C'_1, S'_1$  sont donnés par les relations (33) où l'on remplace  $I_1, M_1, C_1, S_1$  par leurs valeurs (35), nous placerons :

1° une lame biréfringente  $B'_1$  ayant ses axes parallèles aux axes  $O'_1x'_1y'_1$  et introduisant une différence de phase  $\varphi'_1$  entre les vibrations suivant  $O'_1x'_1$  et  $O'_1y'_1$ ; après traversée de cette lame les paramètres du faisceau diffusé sont devenus (formule 21)

$$\left. \begin{aligned} I'_1, \\ M'_1, \\ C'_1 \cos \varphi'_1 - S'_1 \sin \varphi'_1, \\ C'_1 \sin \varphi'_1 + S'_1 \cos \varphi'_1. \end{aligned} \right\}$$

2° Une lame  $R'_1$ , douée de pouvoir rotatoire, faisant tourner la vibration lumineuse d'un angle  $\psi'_1$ ; après cette lame les paramètres du faisceau sont (formules 20)

$$\left. \begin{aligned} I'_1, \\ M'_1 \cos 2\psi'_1 - (C'_1 \cos \varphi'_1 - S'_1 \sin \varphi'_1) \sin 2\psi'_1, \\ M'_1 \sin 2\psi'_1 + (C'_1 \cos \varphi'_1 - S'_1 \sin \varphi'_1) \cos 2\psi'_1, \\ C'_1 \sin \varphi'_1 + S'_1 \cos \varphi'_1. \end{aligned} \right\}$$

3° Enfin un polariseur rectiligne  $N'_1$  d'orientation fixe, dont le plan de vibration contienne l'axe  $O'_1x'_1$ . A la sortie de ce polariseur l'intensité  $\mathcal{J}_1$  de la lumière est égale à la demi-somme des deux premiers paramètres de Stokes du faisceau qui y pénètre, donc

$$\mathcal{J}_1 = \frac{1}{2} [I'_1 + M'_1 \cos 2\psi'_1 - C'_1 \sin 2\psi'_1 \cos \varphi'_1 + S'_1 \sin 2\psi'_1 \sin \varphi'_1]. \quad (36)$$

Considérons maintenant la lumière parcourant en sens inverse ce dispositif. Nous supposons que

<sup>(2)</sup> Il suffit que les directions  $Oz_1$  et  $Ox_2$  soient équivalentes dans le milieu considéré qui peut par exemple être seulement de révolution autour de la normale  $Oy$  au plan de diffusion.



le faisceau  $\mathcal{F}_2$  sort du polariseur  $N'_1$  avec une intensité 1; il traverse ensuite la lame  $R'_1$ , puis la lame  $B'_1$ ; ses paramètres ont alors pour valeurs, par rapport aux axes  $O_2x_2y_2$ :

$$\left. \begin{aligned} I_2 &= 1, \\ M_2 &= \cos 2\psi'_1, \\ C_2 &= \sin 2\psi'_1 \cos \varphi'_1, \\ S_2 &= \sin 2\psi'_1 \sin \varphi'_1. \end{aligned} \right\} \quad (37)$$

Après diffusion, le faisceau  $\mathcal{F}'_2$ , de paramètres  $I'_2$ ,  $M'_2$ ,  $C'_2$ ,  $S'_2$  donnés par les relations (34) dans lesquelles  $I_2$ ,  $M_2$ ,  $C_2$ ,  $S_2$  sont remplacés par leurs valeurs (37), traverse la lame  $B_1$ , puis la lame  $R_1$  et enfin le polariseur  $N_1$ . A la sortie de ce polariseur l'intensité de la lumière est [cf. formule (36)]

$$\mathcal{J}_2 = \frac{1}{2} [I'_2 + M'_2 \cos 2\psi_1 - C'_2 \sin 2\psi_1 \cos \varphi_1 + S'_2 \sin 2\psi_1 \sin \varphi_1]. \quad (38)$$

Les faisceaux  $\mathcal{F}_1$  et  $\mathcal{F}_2$  étant pris avec des intensités égales à la sortie des polariseurs  $N_1$  et  $N'_1$ , le principe de réciprocité s'exprime par l'égalité des intensités  $\mathcal{J}_1$  et  $\mathcal{J}_2$  de la lumière diffusée à la sortie de ces polariseurs, quelles que soient les caractéristiques des lames introduites sur le trajet de la lumière. On doit donc avoir

$$I'_1 + M'_1 \cos 2\psi'_1 - C'_1 \sin 2\psi'_1 \cos \varphi'_1 + S'_1 \sin 2\psi'_1 \sin \varphi'_1 \\ = I'_2 + M'_2 \cos 2\psi_1 - C'_2 \sin 2\psi_1 \cos \varphi_1 + S'_2 \sin 2\psi_1 \sin \varphi_1 \quad (39)$$

quelles que soient les valeurs des angles  $\psi_1$ ,  $\varphi_1$ ,  $\psi'_1$ ,  $\varphi'_1$ . En tenant compte des relations (33), (34), (35) et (37), on obtient

$$\begin{aligned} & (a_{12} - a_{21})(\cos 2\psi_1 - \cos 2\psi'_1) \\ & + (a_{13} + a_{31})(\sin 2\psi_1 \cos \varphi_1 - \sin 2\psi'_1 \cos \varphi'_1) \\ & + (a_{14} - a_{41})(\sin 2\psi_1 \sin \varphi_1 - \sin 2\psi'_1 \sin \varphi'_1) \\ & + (a_{23} + a_{32})(\sin 2\psi_1 \cos \varphi_1 \cos 2\psi'_1 - \sin 2\psi'_1 \cos \varphi'_1 \cos 2\psi_1) \\ & + (a_{24} + a_{42})(\sin 2\psi_1 \sin \varphi_1 \cos 2\psi'_1 - \sin 2\psi'_1 \sin \varphi'_1 \cos 2\psi_1) \\ & - (a_{34} + a_{43}) \sin(\varphi_1 - \varphi'_1) \sin 2\psi_1 \sin 2\psi'_1 \equiv 0. \end{aligned} \quad (40)$$

Cette identité exige que tous les coefficients des expressions trigonométriques qui y figurent soient nuls. En effet, pour

$$\psi_1 = 0, \quad \psi'_1 = \frac{\pi}{2},$$

elle donne

$$a_{12} - a_{21} = 0, \quad (41)$$

pour

$$\psi_1 = -\psi'_1 = \frac{\pi}{4}, \quad \varphi_1 = \varphi'_1 = 0, \\ a_{13} + a_{31} = 0, \quad (42)$$

pour

$$\psi_1 = -\psi'_1 = \frac{\pi}{4}, \quad \varphi_1 = \varphi'_1 = \frac{\pi}{2}, \\ a_{14} - a_{41} = 0, \quad (43)$$

Puis, tenant compte de ces relations (41), (42) et (43), on obtient pour

$$\psi_1 = \frac{\pi}{4}, \quad \psi'_1 = \varphi_1 = \varphi'_1 = 0, \\ a_{23} + a_{32} = 0, \quad (44)$$

pour

$$\psi_1 = \frac{\pi}{4}, \quad \psi'_1 = 0, \quad \varphi_1 = \varphi'_1 = \frac{\pi}{2}, \\ a_{24} - a_{42} = 0, \quad (45)$$

et enfin pour

$$\psi_1 = \psi'_1 = \frac{\pi}{4}, \quad \varphi_1 = \frac{\pi}{2}, \quad \varphi'_1 = 0, \\ a_{34} + a_{43} = 0. \quad (46)$$

Les 16 coefficients de diffusion doivent ainsi satisfaire à six conditions de symétrie ou d'antisymétrie, ce qui prouve que la diffusion sous un angle donné par un milieu isotrope assymétrique doit être caractérisée par 10 coefficients indépendants.

Et ces conditions permettent d'écrire dans ce cas général les relations linéaires qui lient les paramètres de polarisation du faisceau diffusé à ceux du faisceau excitateur sous la forme

$$\left. \begin{aligned} I' &= a_1 I + b_1 M - b_3 C + b_5 S, \\ M' &= b_1 I + a_2 M - b_4 C + b_6 S, \\ C' &= b_3 I + b_4 M + a_3 C + b_2 S, \\ S' &= b_5 I + b_6 M - b_2 C + a_4 S. \end{aligned} \right\} \quad (47)$$

Dans le cas d'un milieu diffusant symétrique, et par suite dénué de pouvoir rotatoire, les coefficients  $b_3$ ,  $b_4$ ,  $b_5$ ,  $b_6$  sont nécessairement nuls puisqu'il faut alors retrouver la forme des relations (33 bis). La diffusion sous un angle donné doit donc être caractérisée pour un milieu symétrique par six coefficients indépendants, les relations linéaires entre les paramètres de polarisation se réduisent à

$$\left. \begin{aligned} I' &= a_1 I + b_1 M, \\ M' &= b_1 I + a_2 M, \\ C' &= a_3 C + b_2 S, \\ S' &= -b_2 C + a_4 S. \end{aligned} \right\} \quad (47bis)$$

R. S. Krishnan, dans ses publications de 1938 [8 à 12], n'avait considéré que des faisceaux incidents polarisés linéairement, soit horizontalement

$$(I = 1, \quad M = 1, \quad C = S = 0),$$

soit verticalement

$$(I = 1, \quad M = -1, \quad C = S = 0).$$

Ces conditions d'excitation ne font intervenir que les quatre coefficients  $a_{11}$ ,  $a_{12}$ ,  $a_{21}$ ,  $a_{22}$ , et la relation qu'il avait obtenue  $H_v = V_h$  équivaut à l'égalité  $a_{12} = a_{21}$ . Dans le cas plus général envisagé dans son article de 1939 [14] d'un faisceau incident polarisé linéairement dans une direction faisant un



angle  $\theta$  avec la normale au plan de diffusion, on a

$$I = 1, \quad M = -\cos 2\theta, \quad C = \sin 2\theta, \quad S = 0$$

et par suite, en appliquant les formules (47),

$$\rho_\theta = \frac{H_\theta}{V_\theta} = \frac{I' + M'}{I' - M'} = \frac{a_1 + b_1(1 - \cos 2\theta) - a_2 \cos 2\theta - (b_3 + b_4) \sin 2\theta}{a_1 - b_1(1 + \cos 2\theta) + a_2 \cos 2\theta - (b_3 - b_4) \sin 2\theta}.$$

En particulier, pour  $\theta = 0$  et  $\theta = \frac{\pi}{2}$

$$\rho_\nu = \frac{H_\nu}{V_\nu} = \frac{a_1 - a_2}{a_1 + 2b_1 + a_2}, \quad \rho_h = \frac{V_h}{H_h} = \frac{a_1 - a_2}{a_1 - 2b_1 + a_2},$$

ce qui permet de mettre  $\rho_\theta$  sous la forme

$$\rho_\theta = \frac{\frac{1 + \tan^2 \theta}{\rho_h} - 2 \frac{b_3 + b_4}{a_1 - a_2} \tan \theta}{\frac{\tan^2 \theta + 1}{\rho_\nu} - 2 \frac{b_3 - b_4}{a_1 - a_2} \tan \theta}.$$

On voit que la formule (7), obtenue de façon incertaine par R. S. Krishnan, doit être valable pour tout milieu symétrique, car alors  $b_3 = b_4 = 0$ , mais non pour un milieu assymétrique.

**8. Diffusion axiale.** — La lumière diffusée dans la direction même de l'excitation ne peut pas être distinguée de la lumière qui subsiste dans le faisceau excitateur. Pourtant en utilisant un faisceau excitateur d'ouverture  $\omega$  très petite, on peut définir à la limite un faisceau transmis  $\mathcal{F}$  d'axes  $Oz_1$ , et d'ouverture  $\omega$ , et un faisceau diffusé  $\mathcal{F}'_0$  groupant les rayons émergents dans les directions comprises entre les deux cônes d'axe  $Oz_1$  et d'ouvertures  $\eta$  et  $\eta + d\eta$ . Le faisceau  $\mathcal{F}'_0$  ainsi défini peut encore dépendre du petit angle  $\eta$ , mais il possède, quel que soit cet angle, une symétrie de révolution autour de  $Oz_1$ .

Les considérations de réciprocité s'appliquent au faisceau transmis  $\mathcal{F}$  et au faisceau diffusé axialement  $\mathcal{F}'_0$ . En prenant pour définir les états de polarisation de ces faisceaux des axes parallèles à ceux choisis pour le faisceau excitateur, on aura donc pour ces faisceaux des relations de même forme que les relations (47) et que nous écrirons pour le faisceau  $\mathcal{F}'_0$  en marquant les coefficients par un indice supérieur 0 pour indiquer la valeur  $\Phi = 0$  de l'angle d'observation

$$\left. \begin{aligned} I' &= a_1^0 I + b_1^0 M - b_3^0 C + b_5^0 S, \\ M' &= b_1^0 I + a_2^0 M - b_4^0 C + b_6^0 S, \\ C' &= b_3^0 I + b_4^0 M + a_3^0 C + b_2^0 S, \\ S' &= b_5^0 I + b_6^0 M - b_2^0 C + a_4^0 S. \end{aligned} \right\} \quad (48)$$

Mais il faut encore dans ce cas exprimer la symétrie de révolution du phénomène autour de la direction commune des faisceaux considérés. Si l'on fait tourner le faisceau incident  $\mathcal{F}$  sur lui-même d'un

angle quelconque, le faisceau  $\mathcal{F}'_0$  diffusé axialement doit tourner sur lui-même d'un angle égal. Il suffit de considérer une rotation infinitésimale  $d\alpha$  qui transforme le faisceau  $\mathcal{F}(I, M, C, S)$  en faisceau  $\mathcal{F}_1$  de paramètres

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= I, \\ M_1 &= M - C \, 2d\alpha, \\ C_1 &= M \, 2d\alpha + C, \\ S_1 &= S, \end{aligned} \right\} \quad (49)$$

et le faisceau  $\mathcal{F}'_0(I', M', C', S')$  en un faisceau  $\mathcal{F}'_{01}$  de paramètres

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= I', \\ M_1 &= M' - C' \, 2d\alpha, \\ C_1 &= M' \, 2d\alpha + C', \\ S_1 &= S'. \end{aligned} \right\} \quad (50)$$

Les paramètres  $I_1, M_1, C_1, S_1$  doivent s'exprimer en fonctions des paramètres  $I, M, C, S$  par des relations identiques aux relations (48); or l'élimination des paramètres  $I, M, C, S$  et  $I', M', C', S'$  entre les relations (48), (49) et (50) donne (toujours au premier ordre en  $d\alpha$ )

$$\left. \begin{aligned} I_1 &= a_1^0 I + (b_1^0 + 2d\alpha b_3^0) M - (b_3^0 - 2d\alpha b_1^0) C + b_5^0 S, \\ M_1 &= (b_1^0 - 2d\alpha b_3^0) I + a_2^0 M - [b_4^0 + 2d\alpha(a_3^0 - a_2^0)] C + (b_6^0 - 2d\alpha b_2^0) S, \\ C_1 &= (b_3^0 + 2d\alpha b_1^0) I + [b_4^0 - 2d\alpha(a_3^0 - a_2^0)] M + a_3^0 C + (b_2^0 + 2d\alpha b_6^0) S, \\ S_1 &= b_5^0 I + (b_6^0 + 2d\alpha b_2^0) M - (b_2^0 - 2d\alpha b_6^0) C + a_4^0 S \end{aligned} \right\} \quad (51)$$

et pour que ce système linéaire soit identique au système (48), il faut et il suffit que

$$b_1^0 = b_3^0 = b_2^0 = b_6^0 = 0, \quad a_2^0 = a_3^0. \quad (52)$$

On a donc pour le faisceau axial

$$\left. \begin{aligned} I' &= a_1^0 I + b_5^0 S, \\ M' &= a_2^0 M - b_6^0 C, \\ C' &= b_4^0 M + a_3^0 C, \\ S' &= b_5^0 I + a_4^0 S. \end{aligned} \right\} \quad (53)$$

Ces formules sont relatives à un milieu quelconque assymétrique; elles montrent que la diffusion vers l'avant dépend en général de 6 coefficients indépendants

Pour un milieu symétrique on doit avoir  $b_4^0 = b_6^0 = 0$ , et par suite

$$\left. \begin{aligned} I' &= a_1^0 I, \\ M' &= a_2^0 M, \\ C' &= a_3^0 C, \\ S' &= a_4^0 S, \end{aligned} \right\} \quad (53bis)$$

La diffusion vers l'avant dépend donc dans ce cas de trois coefficients indépendants.

Des relations analogues aux relations (53) ou (53 bis) doivent exister pour le faisceau transmis  $\mathcal{F}$ ,



avec d'autres valeurs des coefficients qui ont alors des significations simples. La quantité

$$1 - \alpha_1^0$$

détermine l'absorption en lumière naturelle, la quantité

$$b_4^0 : \alpha_2^0$$

la tangente de la rotation (pouvoir rotatoire), la quantité

$$1 - \sqrt{\alpha_2^0{}^2 + b_4^0{}^2} : \alpha_1^0$$

la dépolarisation en lumière linéaire, la quantité

$$1 - |\alpha_4^0| : \alpha_1^0$$

la dépolarisation en lumière circulaire, enfin la quantité

$$b_5^0 : \alpha_1^0$$

le dichroïsme circulaire.

**9. Diffusion rétrograde.** — Des considérations analogues s'appliquent au cas de la diffusion dans la direction inverse de la direction d'excitation, puisqu'il y a aussi dans ce cas symétrie de révolution. Mais alors, à une rotation d'un certain angle du faisceau exciteur sur lui-même doit correspondre une rotation *inverse* de même grandeur absolue du faisceau diffusé.

En marquant par un indice supérieur  $\pi$  les coefficients des relations linéaires (47) pour la valeur  $\Phi = \pi$  qui correspond à la diffusion rétrograde, on trouve, en considérant une rotation infinitésimale  $d\alpha$ , et avec des notations analogues à celles du paragraphe précédent, que les relations

$$\left. \begin{aligned} I'_1 &= \alpha_1^\pi I_1 + (b_1^\pi + 2b_3^\pi d\alpha) M_1 - (b_2^\pi - 2b_4^\pi d\alpha) C_1 + b_5^\pi S_1, \\ M'_1 &= (b_1^\pi + 2b_3^\pi d\alpha) + (\alpha_2^\pi + 4b_4^\pi d\alpha) M_1 \\ &\quad - [b_2^\pi - 2(\alpha_2^\pi + \alpha_3^\pi) d\alpha] C_1 + (b_5^\pi + 2b_6^\pi d\alpha) S_1, \\ C'_1 &= (b_2^\pi - 2b_4^\pi d\alpha) I_1 + [b_1^\pi - 2(\alpha_2^\pi + \alpha_3^\pi) d\alpha] M_1 \\ &\quad + (\alpha_3^\pi + 4b_4^\pi d\alpha) C_1 + (b_5^\pi - 2b_6^\pi d\alpha) S_1, \\ S'_1 &= b_5^\pi I_1 + (b_6^\pi + 2b_3^\pi d\alpha) M_1 - (b_2^\pi - 2b_4^\pi d\alpha) C_1 + \alpha_4^\pi S_1 \end{aligned} \right\} \quad (54)$$

doivent être indépendantes de  $d\alpha$ , ce qui exige que

$$b_1^\pi = b_3^\pi = b_2^\pi = b_6^\pi = b_4^\pi = 0, \quad \alpha_2^\pi = -\alpha_3^\pi. \quad (55)$$

Dans le cas de la diffusion rétrograde par un milieu quelconque les relations linéaires entre les paramètres de polarisation doivent donc se réduire à

$$\left. \begin{aligned} I' &= \alpha_1^\pi I + b_5^\pi S, \\ M' &= \alpha_2^\pi M, \\ C' &= -\alpha_2^\pi C, \\ S' &= b_5^\pi I + \alpha_4^\pi S. \end{aligned} \right\} \quad (56)$$

Il n'y a plus que quatre coefficients indépendants, un de moins que pour la diffusion vers l'avant.

Pour un milieu symétrique on a de plus  $b_5^\pi = 0$ , donc

$$\left. \begin{aligned} I' &= \alpha_1^\pi I, \\ M' &= \alpha_2^\pi M, \\ C' &= -\alpha_2^\pi C, \\ S' &= \alpha_4^\pi S. \end{aligned} \right\} \quad (56bis)$$

La diffusion rétrograde ne dépend alors que de *trois* coefficients indépendants, comme la transmission et la diffusion axiale vers l'avant.

#### 10. Comparaison avec la diffusion dipolaire.

Les caractères de polarisation des émissions secondaires résultant d'un mécanisme dipolaire ont été déterminés de façon générale par P. Soleillet [18]. Il résulte de sa théorie que les relations linéaires entre les paramètres de Stokes des faisceaux incident et diffusé, définis comme nous l'avons précisé, doivent être dans le cas d'une diffusion dipolaire

$$\left. \begin{aligned} I' &= (a - b \sin^2 \Phi) I - b \sin^2 \Phi M, \\ M' &= -b \sin^2 \Phi I + b(1 + \cos^2 \Phi) M, \\ C' &= 2b \cos \Phi C, \\ S' &= 2c \cos \Phi S. \end{aligned} \right\} \quad (57)$$

$a, b, c$  étant trois coefficients indépendants de l'angle de diffusion  $\Phi$ . Il n'y a pas alors de distinction entre les milieux symétriques et assymétriques.

Pour un angle de diffusion quelconque le cas de la diffusion dipolaire est caractérisé qualitativement par la condition

$$b_2 = 0 \quad (58)$$

qui exprime l'absence totale d'ellipticité de la lumière diffusée lorsque l'ellipticité de la lumière incidente est nulle ( $S' = 0$  quand  $S = 0$ ).

Pour une diffusion dipolaire transversale, on a de plus

$$a_3 \left( \frac{\pi}{2} \right) = a_4 \left( \frac{\pi}{2} \right) = 0 \quad (59)$$

et

$$b_1 \left( \frac{\pi}{2} \right) + a_2 \left( \frac{\pi}{2} \right) = 0, \quad (60)$$

ce qui montre que quelle que soit la polarisation de la lumière excitatrice, il n'y a alors ni obliquité de polarisation ( $C' = 0$ ) ni ellipticité ( $S = 0$ ) dans la lumière diffusée, et que pour une excitation polarisée dans le plan de diffusion ( $I = M, C = S = 0$ ) la lumière diffusée n'est pas polarisée ( $M' = C' = S' = 0$ ).

C'est ce dernier critérium que R. S. Krishnan a utilisé pour établir le caractère multipolaire de la diffusion par certains milieux, notamment par des mélanges liquides au voisinage de l'état critique de miscibilité; mais cette preuve a été contestée [22], la convergence du faisceau incident ou la diffusion secondaire pouvant expliquer, au moins de façon qualitative, les polarisations observées.



L'apparition d'une certaine ellipticité de la lumière diffusée pour une lumière excitatrice polarisée linéairement obliquement ( $C = 0$ ,  $S = 0$ ), qui prouverait que le coefficient  $b_2$  est différent de zéro, me paraît devoir être un critérium beaucoup plus

sûr du caractère multipolaire d'une diffusion, et par suite de la grandeur non négligeable, vis-à-vis de la longueur d'onde, des éléments d'hétérogénéité du milieu diffusant.

Manuscrit reçu le 9 juin 1941.

## BIBLIOGRAPHIE.

- [1] LORD RAYLEIGH, On the transmission of light through an atmosphere containing small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky. *Phil. Mag.*, 1899, **47**, p. 375.
- [2] LORD RAYLEIGH, On the scattering of light by a cloud of similar small particles of any shape and orientated at random. *Phil. Mag.*, 1918, **35**, p. 373.
- [3] R. GANS, Über die form ultramikroskopischer Goldteilchen. *Ann. der Physik*, 1912, **37**, p. 881.
- [4] R. GANS, Methoden zum Formbestimmung subultramikroskopischer Teilchen. *Ann. der Physik*, 1920, **62**, p. 331.
- [5] Y. ROCARD, Théorie moléculaire de la diffusion de la lumière par les fluides. *Ann. de Physique*, 1928, **10**, p. 116.
- [6] G. MIE, Beiträge zur Optik trüber Medien. *Ann. der Physik*, 1908, **25**, p. 377.
- [7] LORD RAYLEIGH, The incidence of light upon a transparent sphere of dimension comparable with the wave-length. *Proc. Roy. Soc.*, 1910, A **84**, p. 25.
- [8] R. S. KRISHNAN, The reciprocity theorem in colloïd optics and its généralisation. *Proc. Ind. Acad. Sc.*, 1938, f A, p. 21.
- [9] R. S. KRISHNAN, Reciprocity theorem in colloïd optics case of orientated particules. *Proc. Ind. Acad. Sc.*, f A, 1938, p. 91.
- [10] R. S. KRISHNAN, Study on light scattering in dilute simple emulsions. *Proc. Ind. Acad. Sc.* 1938, A, p. 98.
- [11] R. S. KRISHNAN, Über die Dispersion der Depolarisation bei der Lichtstreuung in kolloiden Systemen. *Kol. zeit.*, 1938, **84**, p. 2.
- [12] R. S. KRISHNAN, Eine Methode zum Nachweis molekularer Aggregation durch Lichtstreuung. *Kol. zeit.*, 1938, **84**, p. 8.
- [13] FRANCIS PERRIN, Sur la diffusion de la lumière par les grosses molécules. *J. de Chimie Physique*, 1939, **36**, p. 234.
- [14] R. S. KRISHNAN, Scattering of polarised light in colloids. *Proc. Ind. Acad. Sc.*, 1939, A **10**, p. 395.
- [15] LORD RAYLEIGH, Theory of Sound 109. *Ed.*, **1**, 1877, p. 93.
- [16] LORD RAYLEIGH, On the law of reciprocity in diffuse reflexion. *Phil. Mag.*, 1900, **49**, p. 324.
- [17] G. G. STOKES, On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources. *Tr. Cam. Phil. Soc.*, 1852, **9**, p. 399.
- [18] P. SOLEILLET, Sur les paramètres caractérisant la polarisation de la lumière dans les phénomènes de fluorescence. *Ann. de Physique*, 1929, **12**, p. 231.
- [19] J. VON NEUMANN, Mathematische Grundlagen der Quantenmechanik. *Berlin*, 1932.
- [20] M. COURTINES, Les fluctuations. *C. R. Congrès intern. d'Électricité*, Paris 1932, **2**, p. 545.
- [21] J. BERNAMONT, Étude mathématique des fluctuations. *Ann. de Physique*, 1936, p. 00.
- [22] B. K. MOOKERJEE, *Ind. Jour. of Physics*, 1938, **12**, p. 15.
- [23] S. PARTHASARATHY, On the theory of light scattering. *Phil. Mag.*, 1940, **29**, p. 148.



# ÉNERGIES ET PÉRIODES DES DÉSINTÉGRATIONS $\alpha$

PAR M. ANDRÉ BERTHELOT.

Laboratoire de Chimie nucléaire, Collège de France.

## II. — LES PÉRIODES

**Sommaire.** — On propose pour étudier la variation de la période de désintégration  $\alpha$  en fonction de l'énergie de grouper les éléments non par famille radioactive comme on le fait d'ordinaire, mais par famille d'isotopes. En utilisant ce mode de groupement, on procède à une réévaluation des rayons nucléaires qui conduit à des valeurs intermédiaires entre celles de Gamow et celles de Bethe. Enfin, on examine la signification de la relation énergie-période pour les corps à structure fine.

**1. Les relations empiriques.** — Dès 1911, Geiger et Nuttall ont énoncé la loi d'après laquelle le logarithme de la constante radioactive est, pour les éléments de chaque famille, une fonction linéaire du parcours dans l'air de la particule  $\alpha$  émise. Ce dernier étant proportionnel à  $E^{\frac{1}{2}}$  on peut également dire que  $\log \lambda$  est fonction linéaire de  $\log E$ . Il est également bien connu qu'il ne s'agit là que d'une approximation et que les courbes expérimentales diffèrent sensiblement des droites théoriques. Dans ces conditions, la considération du logarithme perd une partie de son intérêt et, dans ce qui suit, nous prendrons pour variables l'énergie et le logarithme de la période.

Comme on n'est guidé par aucune considération théorique sur la forme que doit présenter la courbe relative à chaque famille, on se borne à la tracer de manière à répartir les points expérimentaux de part et d'autre. C'est de cette façon que nous avons tracé les courbes en traits pleins sur la figure 1. Il en résulte, surtout pour les points aux extrémités, une certaine indétermination. Ainsi, dans le cas de la famille de Ac, on voit que l'on pourrait sans difficulté faire passer la courbe par Ac U ou par Pa en augmentant l'écart de l'autre point.

Nous avons porté sur la figure les points correspondant aux mesures les plus récentes des périodes de RaC' ( $1,5 \cdot 10^{-4}$  sec) et de ThC' ( $3 \cdot 10^{-7}$  sec) (1). On constate que pour que ces points se placent sur les courbes de leur famille, il faudrait que celles-ci subissent une grande variation de courbure dont on ne trouve pas trace sur la courbe de la famille de Ac.

Par ailleurs, on peut remarquer qu'on a l'habitude de porter sur les courbes de Geiger Nuttall, l'énergie maximum du spectre lorsque la désintégration se fait avec structure fine. Ceci est illogique car la

période qu'on utilise pour l'autre coordonnée correspond à l'émission de toutes les raies et pas seulement de la plus énergétique. C'est pourquoi sur la figure 1 nous avons porté non seulement l'énergie maximum mais aussi l'étendue du spectre dans le cas où il y en a un. Il semblerait plus normal d'associer la période observée à une valeur moyenne de l'énergie de désintégration qu'à la valeur maximum.

Dans le cas des corps à embranchement (corps C et Ac), la période  $T_\alpha$  à faire intervenir est naturellement celle qu'on observerait en l'absence d'émission  $\beta$  et qui s'exprime, à partir de la période  $T$  observée, par l'expression

$$T_\alpha = T \frac{1}{\frac{dn_\alpha}{dn}}$$

$\frac{dn_\alpha}{dn}$  représentant la proportion de désintégrations  $\alpha$  par rapport à l'ensemble des désintégrations. Ce sont ces valeurs qui ont été utilisées pour construire la figure 1. Dans le cas de Ac le rapport d'embranchement a été pris égal à  $1/1000^e$ , mais cette valeur est mal connue et susceptible d'une assez grosse erreur qui se retrouvera sur  $T_\alpha$ . On constate que des quatre points ainsi déterminés, seul AcC se place sur la courbe de sa famille.

**2. Le groupement par isotopes.** — Nous pouvons maintenant nous demander s'il est logique de grouper les points expérimentaux par familles radioactives. La théorie nous indique que les périodes peuvent se mettre sous la forme  $T = \frac{T_0}{P}$ ,  $T_0$  étant un certain temps et  $P$  la perméabilité de la barrière de potentiel. Cette dernière est une fonction du rapport  $\frac{E}{B}$  de l'énergie de désintégration à la hauteur de la barrière de potentiel, laquelle est elle-même une fonction de  $Z$  et du rayon nucléaire. Si donc nous groupons les éléments par isotopes, la variable  $Z$  n'interviendra plus. Comme, d'autre part, le rayon nucléaire varie comme  $A^{\frac{1}{3}}$ , nous pourrions, en première approximation, négliger sa variation d'un isotope à l'autre, si bien que  $T$  devient une fonction de la seule variable  $E$ . En effet, si nous associons

(1) On sait que les premières estimations de ces courtes périodes avaient été faites par extrapolation des courbes de Geiger Nuttall. Les premières mesures pour RaC' [1] avaient confirmé l'ordre de grandeur ainsi obtenu ( $10^{-6}$  sec). Des mesures plus récentes [2] ont donné un nombre assez différent et l'explication de cette divergence a été donnée par M. Joliot [3]. Ce sont finalement les résultats les plus récents qui paraissent exacts.



(lignes pointillées de la figure 1) les éléments par familles d'isotopes, nous constatons, en nous limitant au cas des éléments à  $Z$  pair, qu'ils se trouvent répartis sur une famille de courbes de même allure, régulièrement décalées les unes par rapport aux autres dans le sens des périodes croissantes en même temps que  $Z$ .

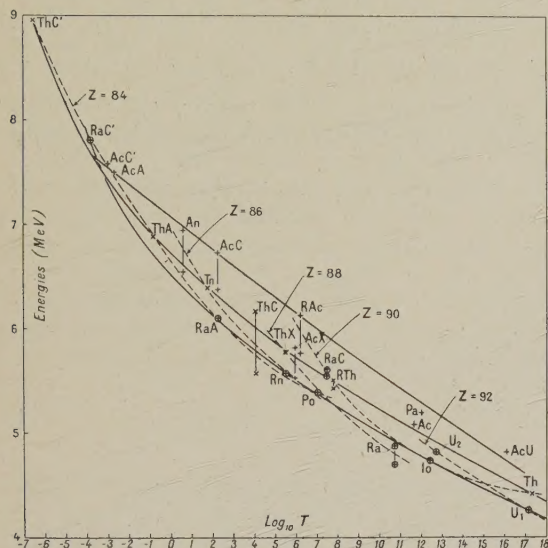


Fig. 1.

La courbe  $Z = 84$  mérite d'être examinée particulièrement. On en possède cinq points avec certitude : Po, RaA, ThA, AcA et AcC'. Il est clair que la valeur ancienne ( $10^{-6}$  sec) pour la période de RaC' est tout à fait incompatible avec le prolongement de cette courbe. Au contraire, la valeur récente ( $1,5 \cdot 10^{-4}$ ) se place exactement sur ce prolongement, ainsi d'ailleurs que la valeur  $3 \cdot 10^{-7}$  de la période de ThC'.

De plus, nous pouvons remarquer que dans le cas des corps à structure fine, la courbe correspondante vient bien passer par un point moyen du spectre et non pas par la limite supérieure. Et nous constatons, en particulier, que AcX cesse d'être un élément anormal.

En ce qui concerne les corps C, l'existence d'un spectre rend le tracé de la courbe imprécis, mais, en gros, on peut dire qu'elle a la même allure que les autres mais se trouve déportée du côté des périodes plus longues. Un décalage du même genre s'observe également pour Ac et pour Pa. Il semble donc que d'une façon générale les éléments à  $Z$  impair aient des périodes plus élevées que les éléments à  $Z$  pair.

Un élément est nettement aberrant : AcU. Nous avons déjà vu que son énergie était anormale. Il en va de même de sa période.

Nous allons maintenant préciser et compléter les indications précédentes en utilisant les résultats de la théorie de l'émission  $\alpha$ .

### 3. La transparence de la barrière de potentiel et la détermination des rayons nucléaires.

La théorie bien connue de Gamow donne la période de l'émission  $\alpha$  sous la forme

$$T = T_0 e^{2C},$$

$T_0$  est pratiquement une constante dont la théorie fournit l'expression pour les différents noyaux en cause et qui est égale à  $3,3 \cdot 10^{-21}$  sec.

$e^{2C}$  est l'inverse de la pénétrabilité de la barrière et  $C$  possède l'expression suivante :

$$C = \frac{2zZ'e^2}{\hbar v} \left[ \arccos x^{\frac{1}{2}} - x^{\frac{1}{2}}(1-x)^{\frac{1}{2}} \right],$$

dans laquelle  $x$  est le rapport de l'énergie de désintégration  $E$  à la hauteur de la barrière  $B = \frac{Z'ze^2}{R}$ ,  $R$  le rayon nucléaire,  $Z'e$  et  $ze$  les charges du noyau final et de la particule  $\alpha$ , et  $v$  la vitesse de cette dernière.

Cette formule permet, connaissant  $E$  et  $T$ , de calculer  $R$  et les valeurs du rayon nucléaire ainsi calculées par Gamow s'échelonnent dans le domaine des émetteurs  $\alpha$  de  $7,2$  à  $9,4 \cdot 10^{-13}$  cm, soit une fluctuation de  $\pm 10$  pour 100 autour de la valeur moyenne.

Le point de vue du modèle nucléaire à un corps qu'avait utilisé Gamow est maintenant abandonné par les physiciens. Cependant, on admet que dans le modèle à plusieurs corps l'expression de la période a la même forme,  $T_0$  étant maintenant la période d'émission en l'absence de barrière de potentiel. La difficulté consiste à en fixer la valeur. En admettant qu'elle est la même que celle d'émission d'un neutron de même énergie, Bethe a estimé  $T_0$  à  $0,7 \cdot 10^{-15}$  sec et a procédé sur cette base à une réévaluation des rayons nucléaires qu'il a trouvé échelonnés de  $10,6$  à  $13,9 \cdot 10^{-13}$  cm [4]. Il admet comme valeur moyenne  $R = 12,3 \cdot 10^{-13}$  cm d'où il déduit pour le rayon élémentaire moyen, par la formule

$$R = r_0 A^{\frac{1}{3}}$$

$$r_0 = 2,05 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

alors que la valeur obtenue par Gamow était

$$r_0 = 1,58 \cdot 10^{-13} \text{ cm}.$$

On doit cependant remarquer que les rayons ainsi calculés présentent de larges déviations par rapport à la loi en  $A^{\frac{1}{3}}$ .

Nous avons cherché si l'expérience ne pouvait pas nous fournir à la fois  $T_0$  et  $R$ . Comme nous l'avons déjà fait remarquer si nous nous limitons à des éléments isotopes, la période peut être considérée comme dépendant seulement de l'énergie.

Le problème consiste alors à choisir la valeur de  $T_0$  pour que la variation observée de la période en fonction de l'énergie soit conforme à la variation



calculée. De plus nous pourrions, pour préciser la concordance, tenir compte de la variation du rayon nucléaire en comparant des éléments de nombres de masse assez différents, ceci en admettant la loi  $R = r_0 A^{\frac{1}{3}}$ .

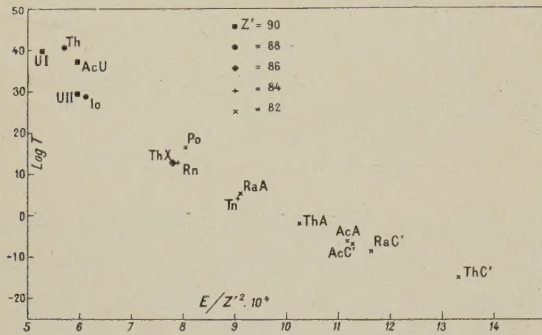


Fig. 2.

Pratiquement, on opère de la façon suivante. Nous avons dit que

$$T = T_0 e^{2C},$$

donc

$$\text{Log } T = \text{Log } T_0 + 2C,$$

et  $C$  peut être mis sous la forme suivante [5] :

$$C = g(Z', R) \gamma(x),$$

avec

$$g(Z', R) = \frac{(2M\alpha Z' e^2 R)^{\frac{1}{2}}}{\hbar},$$

$M$ , masse réduite de la particule  $\alpha$  et du noyau final,

$$\gamma(x) = x^{-\frac{1}{2}} \arccos x^{\frac{1}{2}} - (1-x)^{\frac{1}{2}}.$$

Dans la région des éléments radioactifs naturels,  $M$  varie de 0,982 à 0,984  $M_\alpha$ . On peut prendre la valeur moyenne 0,983  $M_\alpha = 6,47 \cdot 10^{-24}$  g, et en remplaçant les lettres par leur valeur

$$g(Z', R) = 23,3 \cdot 10^5 (RZ')^{\frac{1}{2}},$$

et de même si l'on exprime  $E$  en MeV

$$x = 3,48 \cdot 10^{12} \frac{ER}{Z'}.$$

On voit clairement que la perméabilité ne dépend en réalité pas de trois variables indépendantes mais de deux, puisque seules les combinaisons  $RZ'$  et  $\frac{ER}{Z'}$  interviennent dans son expression. Il va être particulièrement commode de prendre pour variables

$$u = RZ' \quad \text{et} \quad v = \frac{E}{Z'^2},$$

nous avons alors

$$\text{Log } T = \text{Log } T_0 + 46,6 \cdot 10^5 u^{\frac{1}{2}} \gamma[3,48 \cdot 10^{12} uv].$$

L'expérience nous donne pour chaque désintégration la valeur de  $v$ . Si nous considérons une série d'éléments isotopes, il leur correspond pratiquement la même valeur de  $u$ . Donc, en principe, il nous suffirait de connaître  $E$  et  $T$  pour deux isotopes pour en déduire les valeurs de  $T_0$  et  $u$ , donc aussi de  $R$ . Pratiquement, nous opérerons comme suit. D'une part, nous traçons sur un papier calque les points expérimentaux donnant  $\log T$  en fonction de  $\frac{E}{Z'^2}$  par famille d'isotopes (fig. 2). D'autre part, nous traçons sur un autre papier, pour différentes valeurs de  $u$ , la courbe donnant en fonction de  $v$  (fig. 3),

$$\text{Log } T' = 46,6 \cdot 10^5 u^{\frac{1}{2}} \gamma[3,48 \cdot 10^{12} uv].$$

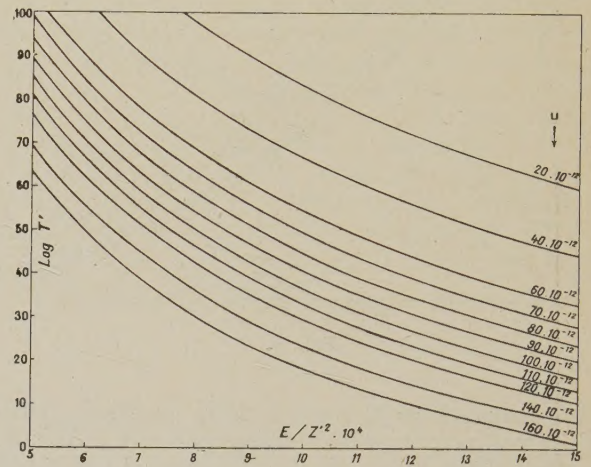


Fig. 3.

On place le calque sur le graphique de manière que les échelles d'abscisses coïncident et on le déplace parallèlement à l'axe des ordonnées jusqu'à ce que soient réalisées les conditions suivantes :

1° Les éléments isotopes sont situés sur une même courbe  $u = \text{const.}$

2° Quand on passe des isotopes de Po ( $Z' = 82$ ) à ceux de U ( $Z' = 90$ ), la valeur de  $u$  a dû augmenter en valeur relative de

$$\frac{\Delta u}{u} = \frac{\Delta(RZ')}{RZ'} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta Z'}{Z'}.$$

Si l'on admet la loi  $R = r_0 A^{\frac{1}{3}}$

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{3} \frac{\Delta A}{A},$$

donc

$$\frac{\Delta u}{u} = \frac{1}{3} \frac{\Delta A}{A} + \frac{\Delta Z'}{Z'} = \frac{1}{3} \frac{22}{225} + \frac{8}{86} = 0,032 + 0,093 = 0,125.$$

Nous avons utilisé pour cette détermination seulement les éléments dont le spectre est simple



et qui ne donnent pas lieu à un embranchement. Nous disposons alors

3 pts pour	$Z' = 90$ (UI, UII, AcU)
2 »	$Z' = 88$ (Io, Th)
1 »	$Z' = 86$ (ThX)
2 »	$Z' = 84$ (Rn, Th)
7 »	$Z' = 82$ (Po, RaA, ThA, AcA, AcC', ThC' et RaC').

Comme on le voit sur la figure, les courbes se déforment peu lorsque  $u$  varie, si bien que si la condition 1° est remplie pour une courbe elle l'est aussi pour les courbes voisines. C'est donc cette condition que l'on utilise pour dégrossir la recherche, et la condition 2 sera utilisée pour préciser la superposition des deux dessins. On constate alors que le meilleur résultat est obtenu lorsqu'on place les isotopes de Po sur la courbe  $u = 90 \cdot 10^{-12}$  avec une erreur possible de  $\pm 10$  pour 100. La figure 4 représente cette superposition. Nous y avons reporté tous les émetteurs  $\alpha$ . D'où pour le rayon moyen des noyaux produits par la désintégration des isotopes de Po

$$R = \frac{90 \cdot 10^{-12}}{82} = 11 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

d'où l'on déduit, en prenant égal à  $210$  le nombre de masse moyen des noyaux produits par les isotopes de Po, la valeur du rayon du rayon élémentaire

$$r_0 = \frac{11 \cdot 10^{-13}}{210^{\frac{1}{3}}} = 1,85 \cdot 10^{-13} \text{ cm},$$

valeur intermédiaire entre celles de Gamow et de Bethe.

La valeur correspondante de la constante  $T_0$  a pour logarithme le décalage en ordonnée des deux graphiques, soit  $-41$ , ce qui correspond à

$$T_0 = 1,6 \cdot 10^{-18} \text{ sec.}$$

On peut constater que les valeurs récemment mesurées pour RaC' et ThC' se placent bien sur la courbe des isotopes du polonium.

Par ailleurs, nous observons quatre points nettement aberrants : Po, Pa, AcU et Th, qui tous ont des périodes plus grandes que ce que donnent les courbes semi-théoriques correspondantes (en gros 100 fois plus grandes).

Comme on ne voit pas de raisons pour que le rayon nucléaire subisse des discontinuités, il paraît plus normal de supposer que c'est la constante  $T_0$  qui est responsable des déviations observées et que la structure de ces noyaux particuliers rend plus difficile la formation d'une particule  $\alpha$ .

On peut aussi, comme il s'agit dans ces quatre cas de désintégrations de faible énergie, supposer que le trou de potentiel de Gamow n'a pas des parois verticales jusqu'en bas, mais se rétrécit au-dessous d'une certaine énergie, ce qui équivaut, pour les énergies inférieures, à une diminution du rayon nucléaire.

A ces exceptions, il faut ajouter le cas des corps C et de Ac corrigés du rapport d'embranchement. Sous cette forme, nous les avons également portés sur la figure 4 et nous retrouvons l'anomalie précédemment signalée d'une valeur trop grande de la période.

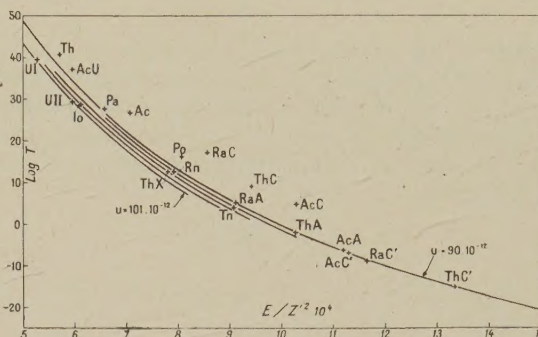


Fig. 4.

On peut observer que les trois corps C se trouvent à peu près placés sur une courbe parallèle aux courbes précédentes, ce qui confirme l'hypothèse selon laquelle les variations de période seraient dues à des variations, non du rayon, mais de la constante  $T_0$ . Les éléments présentant ces valeurs trop élevées de  $T_0$  sont donc : les éléments à  $Z$  impair, plus Po, Th et AcU.

**4. Le cas des corps à structure fine.** — Les courbes de la figure 4 nous permettent de déterminer la période d'un corps quelconque connaissant son énergie de désintégration. En particulier, dans le cas des corps à structure fine, nous pouvons déterminer ce que serait la période pour chacune des raies supposée seule émise.

Si maintenant nous considérons successivement chacune des raies du spectre, nous pouvons écrire, pour la raie  $\alpha_0$  par exemple, que la probabilité d'émission  $\lambda_0$  par unité de temps et par atome est égale au produit  $p_0 q_0 r_0$  dans lequel  $p_0$  est la probabilité de formation de la particule  $\alpha$ ;  $q_0$  est la probabilité de laisser le noyau dans l'état excité correspondant à l'émission de  $\alpha_0$ ;  $r_0$  est la probabilité de traverser la barrière de potentiel.

A la probabilité  $\lambda_0$  correspond la période

$$T_0 = \frac{0,693}{\lambda_0} = \frac{0,693}{p_0 q_0 r_0}.$$

Dans le cas particulier de la désintégration avec raie unique,  $q_0 = 1$  et la période est

$$T'_0 = \frac{0,693}{p_0 r_0}.$$

C'est cette quantité  $T'_0$  que nous donnent les courbes précédentes.



Soit donc un spectre qui donne les raies  $\alpha_0, \alpha_1, \dots, \alpha_i$  avec les intensités  $n_0, n_1, \dots, n_i$ . Nous avons

$$\frac{\lambda_0}{\lambda} = \frac{n_0}{\sum n_i}, \quad \lambda_0 = \lambda \frac{n_0}{\sum n_i},$$

ou

$$T_0 = T \frac{\sum n_i}{n_0}$$

$T$  étant la valeur relative à l'ensemble du spectre, c'est-à-dire correspondant à la décroissance globale de la substance considérée. De données expérimentales nous déduisons donc  $T_0$  par la formule précédente; des courbes semi-empiriques nous tirons  $T'_0$ , d'où finalement

$$q_0 = \frac{T'_0}{T_0} = \frac{T'_0}{T} \frac{n_0}{\sum n_i}.$$

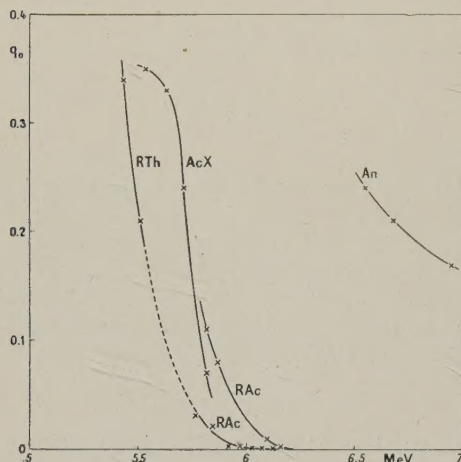


Fig. 5.

Nous pouvons donc déterminer pour chaque élément à structure fine la probabilité qu'a le corps formé de rester sur chacun des états excités possibles, à condition de connaître l'intensité relative des différentes raies. Nous avons calculé  $q_0$  pour les corps : RTh, An, AcX et RAc, les autres éléments à structure fine ne se prêtant pas à ce calcul, soit parce que les intensités relatives ne sont pas assez bien connues (Ra), soit parce que les corps ne suivent pas la loi normale (corps C).

La variation de  $q_0$  en fonction de l'énergie est représentée par les courbes de la figure 5 au sujet desquelles nous allons faire quelques remarques :

1°  $q_0$  est toujours une fonction décroissante de l'énergie et c'est seulement dans le cas de AcX qu'on observe l'amorce d'un maximum.

2° Dans le cas de RAc, les points se groupent, non pas sur une mais sur deux courbes, toutes deux décroissantes comme si certaines raies correspondaient à des transitions permises et les autres à des transitions interdites. Il est d'ailleurs à remarquer que la courbe relative à ces dernières se place dans le prolongement de l'élément de courbe relatif à RTh qui est un isotope de RAc, ce qui suggère qu'en première approximation la variation de  $q_0$  avec l'énergie pourrait, comme c'était le cas pour la période, ne dépendre que de  $Z$ .

3° La somme des valeurs de  $q_0$  observées doit, en principe, être égale à 1. C'est le cas pour AcX, mais dans les autres cas le total est inférieur à l'unité. Cela veut probablement dire qu'il existe des raies qui ont échappé à l'observation. En effet, pour des énergies inférieures à l'énergie la plus basse observée, la valeur de  $q_0$  augmente sans doute encore mais la pénétrabilité de la barrière de potentiel diminue très vite si bien que l'intensité résultante de la raie doit devenir très faible. Par exemple, dans la région des énergies de RAc, une diminution de 100 000 V augmente la période d'un facteur égal à environ 8,6. Si, par exemple, on compare deux raies dont les  $q_0$  sont dans le rapport 3 à 1, la première étant d'énergie 300 000 V inférieure à la seconde, son intensité sera en définitive 200 fois plus faible et, malgré un  $q_0$  supérieur, pourra passer inaperçue.

4° Si l'on regarde la courbe de AcX, on voit que  $q_0$  doit devenir très faible pour des énergies de l'ordre de 6 MeV. On peut alors s'expliquer l'anomalie signalée au paragraphe 2 (1<sup>re</sup> Partie) relative à l'énergie de désintégration de AcX. Les courbes de la figure 2 nous indiquent que AcX devrait avoir une énergie de désintégration voisine de 6,4 MeV. Si une raie de cet ordre existe dans le spectre, la valeur de  $q_0$  doit être extrêmement petite et l'intensité correspondante trop faible pour être expérimentalement observable.

Il m'est agréable de remercier M. le Professeur Joliot qui a bien voulu s'intéresser à ce travail et à qui je suis redevable de diverses remarques qui m'ont été précieuses.

Manuscrit reçu le 2 octobre 1941.

#### BIBLIOGRAPHIE.

- [1] JACOBSEN, *Nature*, 1927, **120**, p. 874.
- [2] DUNWORTH, *Nature*, 1939, **144**, p. 132.
- [3] F. JOLIOT, En cours de publication.

- [4] BETHE, *Rev. of Mod. Phys.*, 1937, **9**, 2, p. 166.
- [5] BETHE, *Rev. of Mod. Phys.*, p. 166, formules 600, 600 a, 600 b.